

Practitioner's Docket No. 51344

PATENT

## IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of: Seita et al.

Serial No.: 10/034,775

Group No.: 1772

Filed: December 27, 2001

Examiner: Not Yet Assigned

For: COMPOSITE MATERIAL WITH IMPROVED BINDING STRENGTH AND  
METHOD FOR FORMING THE SAMEAssistant Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

## TRANSMITTAL OF CERTIFIED COPY

Attached please find the certified copy of the foreign application from which priority is claimed for this case:

Country: Japan  
Application Number: JP 2000-397489  
Filing Date: 27 December 2000

**WARNING:** "When a document that is required by statute to be certified must be filed, a copy, including a photocopy or facsimile transmission of the certification is not acceptable." 37 C.F.R. 1.4(f) (emphasis added).

SIGNATURE OF PRACTITIONER

Reg. No. 33,860

Peter F. Corless

(type or print name of practitioner)

Tel. No. (617) 523-3400

Edwards & Angell, LLP  
Dike, Bronstein, Roberts & Cushman, IP Group  
P.O. Box 9169  
P.O. Address  
Boston, Massachusetts 02209

**NOTE:** "The claim to priority need be in no special form and may be made by the attorney or agent, if the foreign application is referred to in the oath or declaration, as required by § 1.63." 37 C.F.R. 1.55(a).

## CERTIFICATE OF MAILING (37 C.F.R. 1.8a)

I hereby certify that this paper (along with any paper referred to as being attached or enclosed) is being deposited with the United States Postal Service on the date shown below with sufficient postage as first class mail in an envelope addressed to the Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C. 20231.

Date: 7/16/02Deanna M. Rivnerider

(type or print name of person mailing paper)

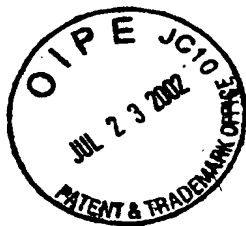
Signature of person mailing paper

(Transmittal of Certified Copies—page 1 of 1)

RECEIVED

JUL 31 2002

OFFICE OF PETITIONS



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年12月27日

出願番号

**Application Number:**

特願 2000-397489

**[ ST.10/C ]:**

[JP 2000-397489]

出願人

**Applicant(s):**

日本リーロナル株式会社

RECEIVED

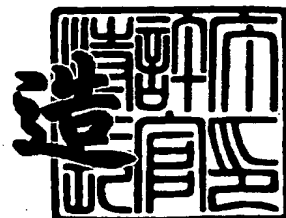
JUL 3 1 2002

OFFICE OF PETITIONS

2002年 3月15日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕



出証番号 出証特 2002-3016979

【書類名】 特許願

【整理番号】 NP-18-10

【特記事項】 特許法第30条第1項の規定の適用を受けようとする特許出願

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナール株式会社技術研究所内

【氏名】 清田 優

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナール株式会社技術研究所内

【氏名】 土田 秀樹

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナール株式会社技術研究所内

【氏名】 今成 眞明

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナール株式会社技術研究所内

【氏名】 日下 大

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナール株式会社技術研究所内

【氏名】 蓬田 浩一

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市真上町5丁目38-34

【氏名】 縄舟 秀美

【特許出願人】

【識別番号】 591138566

【氏名又は名称】 日本リーロナル株式会社

【代理人】

【識別番号】 100073139

【弁理士】

【氏名又は名称】 千田 稔

【選任した代理人】

【識別番号】 100101281

【弁理士】

【氏名又は名称】 辻永 和徳

【選任した代理人】

【識別番号】 100112586

【弁理士】

【氏名又は名称】 橋本 幸治

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011796

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 接合強度が向上された複合材料およびその形成方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理し、該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入し、該金属イオンを還元することにより得られる、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料であって、さらに、該複合材料の樹脂基体と金属とが熱圧着されることを特徴とする前記複合材料。

【請求項 2】 イオン交換基導入処理がプラズマ処理またはイオン交換基導入剤処理である請求項 1 記載の複合材料。

【請求項 3】 樹脂基体と金属との接合強度が  $5 \text{ N/cm}$  以上である請求項 1 または 2 記載の複合材料。

【請求項 4】 金属が V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Ga、As、Se、Mo、Ru、Rh、Pd、Ag、Cd、In、Sb、Te、Os、Ir、Pt、Au、Hg、Pb または Bi、およびそれらの合金から選択される金属である請求項 1～3 の何れか 1 項記載の複合材料。

【請求項 5】 熱圧着が温度  $100 \sim 300^\circ\text{C}$ 、圧力  $490 \sim 2450 \text{ N/cm}^2$ 、時間  $5 \sim 30$  分の条件で行われることを特徴とする請求項 1～4 の何れか 1 項記載の複合材料。

【請求項 6】 請求項 1～5 の何れか 1 項記載の複合材料をさらにめっき処理して得られる複合材料。

【請求項 7】 熱圧着の前に複合材料をめっき処理することを特徴とする請求項 1～6 の何れか 1 項記載の複合材料。

【請求項 8】 (1) 樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理する工程、(2) 該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入する工程、(3) 該金属イオンを還元し、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料を形成させる工程、および(4) 該複合材料の樹脂基体と金属とを熱圧着する工程を含む、樹脂基体と金属との接合強度が向上された複合材料の形成方法。

【請求項 9】 工程(3)の後および/または工程(4)の後に、複合材料をめっき処理することを特徴とする請求項 8 記載の複合材料の形成方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料および前記複合材料の形成方法に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

プラスチック樹脂基体に対するめっき処理や、プリント配線基板のスルーホールめっき法、セミアディティブ法等におけるめっき処理において、不導体樹脂上に導電性被膜を形成する方法として、古くから、無電解めっき処理が行われてきた。無電解めっき処理によって樹脂基体上に金属被膜が形成された樹脂複合材料においては、一般に、樹脂基体と金属被膜間の接合強度が低い。

一般的に、樹脂基体と金属被膜との接合強度を向上させる方法の1つとして、両者を熱圧着することが考えられる。しかし、無電解めっき処理により形成された樹脂複合材料においては、無電解めっき液の影響、特に無電解銅めっき液に代表されるようなアルカリ性めっき液の影響によって樹脂基体表面が損傷する。この損傷は、熱圧着においては金属被膜の剥離の原因となる。よって、従来は、無電解めっき処理によって得られる複合材料は熱圧着処理の対象にできず、樹脂基体と金属との接合強度が高い複合材料は得られていなかった。

## 【0003】

## 【発明が解決しようとする課題】

このため、樹脂基体上に金属被膜を有する複合材料であって、樹脂基体と金属被膜の接合強度が向上された複合材料が強く要望されている。

本発明は、このような事情に鑑みてなされたものであって、樹脂基体の表面上に金属を有し、該樹脂基体と該金属を熱圧着することにより得られる、該樹脂基体と該金属の接合強度が向上された複合材料を提供することを目的とする。

## 【0004】

## 【課題を解決するための手段】

本発明は、樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理し、該樹脂基体の表面を金

属イオン含有液で処理して金属イオンを導入し、該金属イオンを還元することにより得られる、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料であって、さらに、該複合材料の樹脂基体と金属とが熱圧着されることを特徴とする前記複合材料を提供する。

また、本発明は、（１）樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理する工程、（２）該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入する工程、（３）該金属イオンを還元し、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料を形成させる工程、および（４）該複合材料の樹脂基体と金属とを熱圧着する工程を含む、樹脂基体と金属との接合強度が向上された複合材料の形成方法を提供する。

#### 【0005】

##### 【発明の実施の形態】

本発明は、樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理し、該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入し、該金属イオンを還元することにより得られる、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料であって、さらに、該複合材料の樹脂基体と金属とが熱圧着されることを特徴とする前記複合材料を提供するものであり、以下、本発明を詳述する。

#### 【0006】

本発明の複合材料に使用可能な樹脂基体は、後述する熱圧着処理に耐えることができ、さらに使用目的に応じた適度な物性、例えば、強度、腐食耐性等を有する樹脂基体であれば、任意の樹脂からなる、任意の形状の樹脂基体であることができ、特に限定されるものではない。また、本発明で使用可能な樹脂基体は、樹脂成型物に限定されず、樹脂間にガラス繊維強化材等の補強材を介在させた複合物であってもよく、或いはセラミックス、ガラス、金属等の各種の素材からなる基材に樹脂による被膜を形成したものであってもよい。

#### 【0007】

樹脂基体には任意の樹脂が使用可能であり、例えば、高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、分岐低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、超高分子量ポリエチレン等のポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリブタジエン、ポリブテン樹脂、ポリブチレン樹脂、ポリスチレン樹脂等のポリオレフィン

樹脂；ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリ塩化ビニリデンー塩化ビニル共重合体樹脂、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレン、テトラフルオロエチレンなどのハロゲン含有樹脂；AS樹脂；ABS樹脂；MBS樹脂；ポリビニルアルコール樹脂；ポリアクリル酸メチルなどのポリアクリル酸エステル樹脂；ポリメタアクリル酸メチルなどのポリメタアクリル酸エステル樹脂；メタアクリル酸メチルースチレン共重合体樹脂；無水マレイン酸ースチレン共重合体樹脂；ポリ酢酸ビニル樹脂；プロピオン酸セルロース樹脂、酢酸セルロース樹脂等のセルロース樹脂；エポキシ樹脂；ポリイミド樹脂；ナイロンなどのポリアミド樹脂；ポリアミドイミド樹脂；ポリアリレート樹脂；ポリエーテルイミド樹脂；ポリエーテルエーテルケトン樹脂；ポリエチレンオキサイド樹脂；PET樹脂などの各種ポリエステル樹脂；ポリカーボネート樹脂；ポリサルホン樹脂；ポリビニルエーテル樹脂；ポリビニルブチラール樹脂；ポリフェニレンオキサイドなどのポリフェニレンエーテル樹脂；ポリフェニレンサルファイド樹脂；ポリブチレンテレフタレート樹脂；ポリメチルペンテン樹脂；ポリアセタール樹脂；塩ビー酢ビコポリマー；エチレンー酢ビコポリマー；エチレンー塩ビコポリマー；等およびこれらのコポリマーならびにブレンドのような熱可塑性樹脂、エポキシ樹脂；キシレン樹脂；グアナミン樹脂；ジアルルフタレート樹脂；ビニルエステル樹脂；フェノール樹脂；不飽和ポリエステル樹脂；フラン樹脂；ポリイミド樹脂；ポリウレタン樹脂；マレイン酸樹脂；メラミン樹脂；尿素樹脂；等の熱硬化性樹脂、並びにこれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されない。好ましい樹脂としては、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ビニル樹脂、フェノール樹脂、ナイロン樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリプロピレン樹脂、フッ素系樹脂、ABS樹脂が挙げられ、より好ましくは、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、フッ素系樹脂、ABS樹脂であり、さらにより好ましくは、エポキシ樹脂、およびポリイミド樹脂である。また、樹脂基体は、単独の樹脂からなるものであってもよく、また複数の樹脂からなるものでもよい。また、イオン交換基導入処理される表面が樹脂基体であればよく、他の基体上に樹脂が塗布、または積層されたような複合物であっても良い。

【0008】



本発明の複合材料において樹脂基体上に導入される金属は、単一の金属元素からなる金属であっても良いし、2以上の金属元素からなる合金であっても良い。金属としては、前記合金は複数の金属元素が固溶体を形成した状態または各金属元素からなる成分金属の混合体である非晶体を形成した状態、およびこれらが組み合わさった状態のいずれの状態であっても良い。金属としては、例えば、金属 Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、Ge、As、Se、Y、Zr、Nb、Mo、Tc、Ru、Rh、Pd、Ag、Cd、In、Sb、Te、Hf、Ta、W、Re、Os、Ir、Pt、Au、Hg、Tl、Pb、Bi または Po、およびこれらの合金からなる群から選択される金属が好ましい。より好ましくは、金属は、金属 V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Ga、As、Se、Mo、Ru、Rh、Pd、Ag、Cd、In、Sb、Te、Os、Ir、Pt、Au、Hg、Pb または Bi、およびこれらの合金からなる群から選択される金属である。さらにより好ましくは、金属は、金属 V、Mn、Co、Ni、Cu、Ga、As、Se、Mo、Pd、Ag、In、Sb、Te、Pt、Au、Hg または Bi、およびこれらの合金からなる群から選択される金属である。最も好ましくは、金属は、金属 Co、Ni、Cu、Pd、Ag、Pt または Au、およびこれらの合金からなる群から選択される金属である。

## 【0009】

本発明の複合材料において樹脂基体上に導入される金属は、任意の状態で基体上に存在することが可能である。例えば、金属は微細な粒子として基体表面上にそれぞれ離れて存在していても良いし、被膜、または、網状構造となっているものでも良いし、これらが混在していても良い。また、粒子状となる場合の粒子の分布状態および粒子径など、被膜を形成する場合の被膜の厚さ等の諸形態は、適宜設定されることとなる。金属元素含有成分の導入状態は、後述する(1)樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理する工程、(2)該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入する工程、(3)該金属イオンを還元し、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料を形成させる工程の各条件を変えること、および各工程を複数回繰り返すことによって、適宜調節可能である。

## 【0010】

金属が樹脂基体上に導入されて形成された複合材料の表面は、含まれる金属の種類、量、導入の状態に応じて、導電性、半導体特性、磁性、非帯電性などの様々な有用な特性を有するものとなる。また、金属が被膜を形成する場合には、含まれる金属の種類、および金属が合金の場合は合金の状態等に応じて、導電性被膜、半導体被膜、磁性被膜等の機能性被膜として、各種の有用な特性を有するものとなる。磁性被膜として有用であるという観点からは、金属被膜は、Co-Ni、Co-Cr、Co-V、Ni-Mo-Fe、Gd-Co、Mn-Bi、Mn-Cu-Bi、Pt-Co、Co-Cr等の合金を含むことが好ましい。

#### 【0011】

本発明においては、樹脂基体に使用される上述の樹脂と上述の金属を任意に選択することができる。好ましくは、樹脂がエポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ビニル樹脂、フェノール樹脂、ナイロン樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリプロピレン樹脂、フッ素系樹脂またはABS樹脂、およびこれらの混合物からなる群から選択される樹脂であり、金属が金属V、Mn、Co、Ni、Cu、Ga、As、Se、Mo、Pd、Ag、In、Sb、Te、Pt、Au、HgまたはBi、およびこれらの合金からなる群から選択される金属である。より好ましくは、樹脂はエポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ビニル樹脂、フェノール樹脂、ナイロン樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリプロピレン樹脂またはABS樹脂、およびこれらの混合物からなる群から選択される樹脂であり、金属が金属V、Mn、Co、Ni、Cu、Ga、As、Se、Mo、Pd、Ag、In、Sb、Te、Pt、Au、HgまたはBi、およびこれらの合金からなる群から選択される金属である。さらにより好ましくは、樹脂はエポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂またはABS樹脂、およびこれらの混合物からなる群から選択される樹脂であり、金属は金属V、Mn、Co、Ni、Cu、Ga、As、Se、Mo、Pd、Ag、In、Sb、Te、Pt、Au、HgまたはBi、およびこれらの合金からなる群から選択される金属である。

#### 【0012】

本発明の複合材料においては、樹脂基体と金属との接合強度が向上されている。本明細書における「接合強度」とは、ピール強度測定方法により測定された接

合強度をいう。具体的には、本発明の複合材料の金属上に10ないし30ミクロンの銅被膜を硫酸銅メッキにより形成し、120℃で1時間アニーリングした後、該銅被膜を1cm幅にカットし、引張り試験機を用い、30mm/分の速度で垂直引き剥がし試験（90°ピール強度）により測定した値である。

本発明の複合材料における樹脂基体と金属との接合強度は、熱圧着前の接合強度によって異なるが、一般に、1N/cm以上、好ましくは、5N/cm以上、より好ましくは、8N/cm以上、さらにより好ましくは10N/cm以上である。本発明において熱圧着を行う前の複合材料の接合強度は、一般には、1～5N/cm程度である。なお、無電解めっき処理により得られた複合材料の接合強度は、一般には、1N/cm未満である。

#### 【0013】

本発明の複合材料は、後述するように、樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理し、該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入し、該金属イオンを還元することにより得られるので、樹脂基体と金属との間にキャタリスト層が存在しないことを特徴とする。無電解めっき法によって樹脂基体表面上に金属被膜を形成させる場合には、まず、樹脂基体上に、一般にPdとSn、またはCuからなるキャタリストで処理してPdとスズ塩、またはCuからなる触媒核を形成し、次いで、該触媒核を中心にめっき金属が析出し、金属被膜を形成することとなる。ここで、キャタリスト層とは、樹脂基体上に形成された触媒の層をいうが、該触媒は層状であることを必ずしも必要とせず、樹脂上に触媒が存在していればよいのであって、樹脂表面上に触媒核が点在するような態様であっても良い。したがって、無電解めっき法によって得られた樹脂基体表面上に金属被膜を有する複合材料は、該金属被膜と樹脂基体の間に触媒核が存在し、すなわち、キャタリスト層が存在することとなる。一方、本発明の複合材料は金属元素含有成分と樹脂基体の間にキャタリスト層が存在しない複合材料であり、従来の無電解めっきによって形成されたものと相違する。

#### 【0014】

本発明の複合材料においては、樹脂基体上に導入される金属は、従来の無電解めっきにより導入された場合と比較して、より均一な分布状態を有している。ま

た、金属が被膜を形成する場合には、薄膜形成において従来の無電解めっきにより形成された金属被膜を有する複合材料と比較して、より均一な膜厚を有する。理論により拘束されることは望むものではないが、上記本発明の利点は、本発明の複合材料がキャタリスト層を有していないことに起因するものと考えられる。すなわち、無電解めっきにおいては、樹脂基体上に形成された触媒核を中心に金属が析出するので、形成された金属被膜の膜厚については、触媒核の存在する部分は厚く、存在しない部分は薄くなる。よって、無電解めっきにおける触媒核の分布が不均一で、分布密度が疎であれば200nm以下の膜厚においては膜厚の十分な均一性は図れないこととなり、膜厚のコントロールも不可能である。一方、本発明の複合材料は、触媒核を中心に金属が析出して形成されるものではないので、無電解めっき法に起因する膜厚の不均一性は生じない。

#### 【0015】

上述の本発明に係る複合材料は、(1)樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理する工程、(2)該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入する工程、(3)該金属イオンを還元し、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料を形成させる工程、および(4)該複合材料の樹脂基体と金属とを熱圧着する工程を含む、複合材料の形成方法によって製造できる。以下、これら各工程について詳細に説明する。

工程(1)：「樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理する工程」においては、先ず、樹脂基体がイオン交換基導入処理され、樹脂基体にイオン交換能を有する基が導入される。

本発明においては、イオン交換基導入処理によって導入されるイオン交換能を有する基は、カチオン交換基およびアニオン交換基のいずれであっても良く、例えば、カルボキシル基、チオカルボキシル基、ジチオカルボキシル基、スルホ基、スルフィノ基、スルフェノ基、ハロホルミル基、カルバモイル基、ヒドラジノカルボニル基、アミジノ基、シアノ基、ニトリロ基、イソシアン基、シアナト基、イソシアナト基、チオシアナト基、イソチオシアナト基、ホルミル基、水酸基、カルボニル基、チオホルミル基、チオキソ基、メルカプト基、ヒドロピルオキシル基、アミノ基、イミノ基、ヒドラジノ基、ジアゾ基、アジド基、ニトロ基、

ニトロソ基等が挙げられるがこれらに限定されない。好ましくは、イオン交換能を有する基はカルボキシル基、水酸基、カルボニル基、アミノ基、イミノ基、シアノ基、ニトロ基である。カチオン交換基の場合は、工程（２）において、カチオンである金属イオンでイオン交換され、アニオン交換基の場合は、工程（２）において、アニオンである金属イオンでイオン交換される。

## 【0016】

本発明におけるイオン交換基導入処理としては、プラズマ処理およびイオン交換基導入剤処理が挙げられる。プラズマ処理とイオン交換基導入剤処理は何れか一方の処理でも良いし、両方の処理が行われても良い。両方の処理が行われる場合には処理の順序は問わない。

イオン交換基導入処理がプラズマ処理の場合には、該処理によって樹脂基体は、エッチングによる表面粗化、高エネルギー活性種による樹脂構成元素の脱離（水素の引き抜きなど）、と分岐架橋化や不飽和化され、さらにイオン交換能を有する基の導入などが起こる。

## 【0017】

プラズマ処理によって導入されるイオン交換能を有する基としては、例えば、酸素や空気プラズマではカルボキシル基、水酸基、カルボニル基などの含酸素官能基が挙げられ、アンモニアや、窒素と水素の混合ガスプラズマではアミノ基、イミノ基、シアノ基等の含窒素官能基が挙げられ、窒素ガスプラズマではニトロ基等の官能基が挙げられるがこれらに限定されるものではない。また、前記ガス以外のガスを用いて、他の種類のイオン交換能を有する基を導入することも可能である。プラズマ処理によって、樹脂表面上にイオン交換能を有する基が導入されるので、ほとんどの樹脂基体の表面は親水性に改質される。

## 【0018】

プラズマ処理は、基体樹脂に適切に金属を導入できるものであれば任意の処理方法が可能であり、例えば、減圧プラズマ処理、常圧プラズマ処理などが挙げられるが、特に限定されない。大型樹脂基体の処理ができ、連続処理が可能であるという観点から、常圧プラズマ（大気中、常圧（約１気圧））が好ましい。プラズマ処理を行う装置も、任意の装置を使用することができ、例えば、減圧型プラ

ズマ処理装置などが使用できる。処理条件は使用される樹脂基体、形成される金属元素含有被膜の種類等に応じて適宜設定されるものである。減圧プラズマ処理における処理条件は、好ましくは、放電電流は20kHzで30~200mA、圧力0.1~0.3Pa、処理時間1~30分であり、改質試薬として酸素、アルゴン、CO<sub>2</sub>およびN<sub>2</sub>を使用することができる。より好ましくは、放電電流は20kHzで50~150mA、圧力0.1~0.3Pa、処理時間10~20分であり、改質試薬として酸素、アルゴン、CO<sub>2</sub>およびN<sub>2</sub>を使用することができる。また、常圧プラズマ処理における処理条件は、好ましくは、パルス電圧70~100kV、放電空間1~3cm、処理時間0.5~100分であり、より好ましくは、パルス電圧80~90kV、放電空間1~2cm、処理時間1~30分である。さらに、プラズマ処理における処理温度も適宜設定できるが、樹脂基体の安定性および作業性から常温（約20℃~30℃）が好ましい。プラズマ処理時の雰囲気中のガスとしては、H、N、O、N<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>等があるが、常圧の場合は酸素が好ましい。

## 【0019】

プラズマ処理によって、樹脂基体表面上にイオン交換能を有する基を導入する方法は、特に限定的ではなく、各種の方法が可能であり、使用する樹脂と導入される基の種類に応じて、適宜、公知のプラズマ処理による導入方法を採用することができる。以下に、酸性基としてカルボキシル基を導入する方法を例示する。ポリイミド樹脂フィルムをマイクロ波低温酸素プラズマ処理槽内のターンテーブル上に設置したのち、真空ポンプを作動させて処理槽内を0.13Pa以下に減圧し、ついで、そのまま真空ポンプを作動させた状態で酸素ガスを10mL/分の速度で導入し、ポリイミド樹脂を放電電流50(mA)で5分間照射することにより、樹脂表面にカチオン交換基であるカルボキシル基を形成できる。また、ポリイミド樹脂を1cm程度の狭い空間に70~100KVの高いパルス電圧を印加し、1分間処理し、樹脂表面にカチオン交換基であるカルボキシル基を形成できる。

## 【0020】

イオン交換基導入処理の他の態様であるイオン交換基導入剤処理は、樹脂基体

にイオン交換基導入剤を接触させることにより行われる。接触の方法および時間、接触温度などは、樹脂基体に所望の量のイオン交換能を有する基が導入され、かつ樹脂基体が損傷しないような条件に適宜設定される。接触の方法としては、例えば、浸漬等が挙げられるがこれに限定されるものではない。本発明における工程（１）においては、イオン交換基導入剤処理が行われるが、該処理は１回でも良いし、同一または異なる導入剤を使用して複数回の処理が行われても良い。

#### 【0021】

本発明におけるイオン交換基導入剤としては、樹脂基体にイオン交換能を有する基を導入可能な任意の薬剤が含まれ、好ましくは、ルイス酸またはルイス塩基が挙げられるがこれに限定されるものではない。より好ましくは、イオン交換基導入剤は、硫酸、発煙硫酸、三酸化硫黄、クロロ硫酸、塩化スルフリルなどのスルホン化剤；塩酸、硝酸、酢酸、ギ酸、クエン酸、乳酸等の酸；並びに水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、アンモニア等のアルカリ；およびこれら以外のアミノ化剤、ニトロ化剤、シアノ化剤、酸化剤等が挙げられる。さらにより好ましくは、硫酸、水酸化カリウムまたは水酸化ナトリウムである。

#### 【0022】

例えば、イオン交換基導入剤として硫酸が使用される場合には、導入剤の濃度は一般に、5～17.5M、好ましくは、15～17Mの濃度で使用することが適当である。5M未満では、処理に時間がかかり好ましくない。一方、17.5Mよりも濃度が高くなると、樹脂基体との反応が激しくなり素地を大きく変化させるので好ましくない。処理温度は、一般に、20～90℃、好ましくは40～70℃である。処理時間は、通常、30秒～30分、好ましくは、2分～20分が適当である。

#### 【0023】

また、イオン交換基導入剤として、水酸化カリウムや水酸化ナトリウムの水溶液などのアルカリ溶液が使用される場合には、アルカリ溶液の濃度は、0.1～10M、好ましくは1～5Mである。10M以上では、樹脂基体へのアタックが強くなりすぎ、樹脂基体の劣化を引き起こし易い。アルカリ処理における溶媒は、水およびアルコールが使用できる。処理温度は、10℃～80℃、好ましくは

、25℃～50℃であり、処理時間は、30秒～10分でよく、好ましくは、2分～5分である。アルコールを溶媒として用いた場合は、より低いアルカリ濃度、より低い温度、および／またはより短い時間で、水を溶媒として用いた場合と同じ効果を得ることができる。

#### 【0024】

工程（2）：「該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入する工程」においては、上記の工程（1）でイオン交換基導入処理された樹脂基体を金属イオン含有液で処理する。この処理によって、工程（1）で樹脂基体表面上に導入されたイオン交換能を有する基が、金属イオンとイオン交換反応を行うことにより金属イオンが導入されるものと考えられる。

金属イオン含有液としては、目的とする金属元素含有成分を構成する金属成分が金属イオンとして存在する溶液を用いればよい。例えば、金属を形成する場合には、所望の金属イオンを含有する溶液を用いれば良く、合金を形成する場合には、合金を構成する全てまたは一部の金属成分の金属イオンを含有する溶液を用いればよい。なお、合金において、工程（2）で、合金を構成する一部の金属成分の金属イオンを含有する溶液が使用される場合には、後の工程（3）において残りの金属成分を含む溶液で処理することにより、所望の合金に還元されることとなる。

#### 【0025】

金属イオンは液中で錯イオンであっても良く、この場合、錯イオンは錯陽イオンおよび錯陰イオンのいずれであっても良い。金属イオン含有液は、一般的には、水溶液として使用される。但し、使用する金属イオンによって、媒体がメタノール等の有機媒体、または水と有機媒体の混合媒体である有機溶液であってもよい。尚、必要に応じて、金属イオン含有液には、pHを維持するための安定剤や、更には金属イオンの沈殿防止のための錯化剤等を配合することができる。

#### 【0026】

本発明に使用できる金属イオン含有液に含まれる金属イオンとしては、先に例示した金属元素のイオンが挙げられる。

#### 【0027】



金属イオンは、一般に金属化合物または金属塩として金属イオン含有液に配合される。使用される金属化合物または金属塩の種類については特に限定はなく、金属の種類に応じて、適当な可溶性の金属化合物または金属塩を用いればよい。例えば、蟻酸塩、酢酸塩、クロロ酢酸塩、またはシュウ酸塩等のカルボン酸塩、硫酸塩、亜硫酸塩、チオ硫酸塩、フッ化物、塩化物、臭化物、よう化物、硝酸塩、亜硝酸塩、炭酸水素塩、水酸化物、リン酸塩、亜リン酸塩、ピロリン酸塩、メタリン酸塩、セレン酸塩、チオシアン酸塩、テトラフルオロホウ酸塩、トリスエチレンジアミン塩化物、シアン化物、塩素酸塩、過塩素酸塩、臭素酸塩、過臭素酸塩、ヨウ素酸塩、過臭素酸塩等が挙げられるがこれらに限定されない。好ましくは、硫酸塩、塩化物、硝酸塩であり、より好ましくは硫酸塩である。

#### 【0028】

金属イオン含有液における金属イオンの濃度は、通常、0.01～1モル／リットル程度が適当であり、0.03～0.1モル／リットル程度が好ましい。また、目的とする金属被膜が複数の金属成分を含有する合金の形態である場合には、最終形成物における金属成分のモル比に対応するモル比で金属イオンを含有する溶液を用いればよく、その場合には、これらの複数の金属イオンの合計濃度が上記した範囲となるようにすればよい。

#### 【0029】

金属イオンを含有する溶液で樹脂基体を処理する方法は、特に限定的ではないが、通常は、工程（1）においてプラズマ処理した樹脂基体を金属イオン含有液に浸漬すればよく、この処理は、例えば、20～80℃程度、好ましくは25～60℃程度の温度において、例えば、1～10分程度、好ましくは3～5分程度行えばよい。また、樹脂基体を金属イオン含有液で処理した後に、必要に応じて水洗、乾燥等の処理を行うことができる。

#### 【0030】

金属イオン含有液による処理の後に行われる工程（3）において、金属イオン含有液のpHは低下するので、水酸化物イオンの補充のために、金属イオン含有液のpHは、弱酸性～中性、具体的にはpH2～6程度、好ましくは3～4程度に調整することが適当である。

## 【0031】

工程（３）：「該金属イオンを還元し、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料を形成させる工程」では、上記の工程（２）で導入された金属イオンの還元処理を行うことによって、樹脂基体の表面に金属を導入する。該還元処理の方法は特に限定的ではなく、工程（２）における処理によって樹脂基体表面上に導入された金属イオンを還元して金属化できる方法であればどのような方法でもよいが、通常、還元剤を含有する溶液中に、工程（２）の処理をされた樹脂基体を浸漬する方法によって行う。

## 【0032】

樹脂基体表面上に導入された金属イオンの還元を用いる還元剤としては、該金属イオンを還元して金属を析出させることができるものであれば、特に制限なく使用できる。通常は、還元剤を含有する溶液は、水溶液として用いられる。この場合に用いる還元剤としては、例えば、水素化ホウ素ナトリウム、ジメチルアミンボラン（DMAB）、トリメチルアミンボラン（TMAB）、ヒドラジン、ホルムアルデヒド、およびこれらの各化合物の誘導体、亜硫酸ナトリウム等の亜硫酸塩、次亜リン酸ナトリウム等の次亜リン酸塩等を挙げることができるが、これらに限定されるものではなく公知の任意の還元剤が使用できる。水溶液中の還元剤濃度は、通常、 $0.0025 \sim 3$  モル／リットル程度、好ましくは  $0.01 \sim 1.5$  モル／リットル程度とすればよい。還元温度は、通常、 $20 \sim 90^{\circ}\text{C}$  程度とし、好ましくは  $25 \sim 80^{\circ}\text{C}$  程度とすればよく、処理時間は、 $1 \sim 60$  分程度、好ましくは  $20 \sim 40$  分程度とすればよい。

## 【0033】

また、還元剤として、セレン尿素、亜ヒ酸等、塩化アンチモン（III）、塩化テルルを用いることも可能であり、これらの還元剤を用いる場合には、酸性基に化学的に吸着された金属イオンが還元されると同時に、還元剤中の金属成分、即ち、セレン尿素を用いた場合には Se、亜ヒ酸を用いた場合には As が、塩化アンチモン（III）を用いた場合には Sb、塩化テルルを用いた場合には Te が還元された金属成分と合金を形成することができる。セレン尿素、亜ヒ酸等の還元剤の使用条件も上記した各還元剤の場合と同様とすればよく、上記した各還

元剤と併用することもできる。特に、セレン尿素を用いる場合には、他の還元剤を共存させることによって、還元剤溶液でのセレン尿素の安定性を向上させることができるので、他の還元剤を共存させることが好ましい。

#### 【0034】

また、上記した還元剤を含有する水溶液を用いる還元処理では、十分な金属化が困難な場合には、より還元性の強い還元剤を含む有機溶剤溶液を用いて還元処理を行うこともできる。このような有機溶剤として使用することのできる還元剤の例としては、金属Li、Na、K等（溶剤：液体アンモニア、アミン類等）、トリアルキルアルミニウム（溶剤：ジオキサン、トルエン、テトラヒドロフラン等）、トリ-n-ブチルスズ等の水素化スズ化合物（溶剤：エーテル系溶媒、ベンゼン、トルエン等）等を挙げることができる。これらの還元剤の有機溶剤溶液を用いて還元処理を行う場合には、還元すべき金属塩の種類に応じて、十分な金属化が行われるように、適宜、還元剤濃度、還元条件等を決めればよい。

#### 【0035】

還元処理は金属イオンを導入された樹脂基体に電磁線を照射することによっても行うことができる。電磁線照射による還元処理は、電磁線の励起エネルギーを還元反応に利用し、導入された金属イオンから金属を析出させる工程である。還元処理に使用できる電磁線としては、金属イオンを還元できる励起エネルギーを有するものであれば任意の電磁線が使用できるが、紫外線が好ましい。電磁線の電力は、10W～10kWの間で使用できるが、処理時間の短縮から、100W～1kWが好ましい。電磁線の照射時間は30秒～1時間であるが、好ましくは1分から10分である。

必要に応じて、ガラスマスク等を装着して紫外線を照射することも出来る。ガラスマスクを装着した場合は、必要な部分（回路）のみを選択的に、金属イオンの還元をすることができる。マスクは、紫外線を通さないものであれば、どのようなマスクでも良い。また、必要な部分以外の未還元金属イオンは希硝酸溶液等で簡単に除去することが出来る。これにより、エッチングや、無電解めっきを行うことなく、直接、樹脂基体表面にパターン化された金属被膜を有する複合材料が形成される。

## 【0036】

上記、(1)～(3)の各工程は1回でも良いし、任意の工程を複数回繰り返すことも可能である。例えば、工程(2)および(3)を繰り返すことによって、金属の導入量を増加させることができる。

## 【0037】

工程(4)：「該複合材料の樹脂基体と金属とを熱圧着する工程」では、上記の工程(3)形成された複合材料を熱圧着することによって、該複合材料の樹脂基体と金属との接合強度を向上させる。熱圧着に使用される該還元処理の方法は特に限定的ではなく、熱圧着に必要な熱および圧力を適用できるものであれば任意の装置を使用できる。例えば、名機製作所製MHPCV750-5-200が挙げられるがこれに限定されるものではない。

## 【0038】

熱圧着の条件は、複合材料における樹脂基体および金属の種類、厚さ、形状、また、複合材料に望まれる接合強度に応じて適宜設定可能であるが、一般には、温度100～300℃、圧力490～2450N/cm<sup>2</sup>、時間5～30分である。好ましくは、熱圧着条件は、温度200～300℃、圧力980～2450N/cm<sup>2</sup>、時間10～30分であり、より好ましくは、温度250～300℃、圧力1960～2450N/cm<sup>2</sup>、時間20～30分である。

## 【0039】

本発明の、樹脂基体と金属との接合強度が向上された複合材料の形成方法は、さらに、複合材料をめっき処理する工程を含むことができる。該めっき処理は、上述の工程(3)の後および/または工程(4)の後に行われることができる。すなわち、工程(3)の後に行われる場合には、めっき処理対象となるのは、圧着処理されていない複合材料であり、工程(4)の後に行われる場合には、めっき処理対象となるのは、圧着処理された後の複合材料である。

該めっき処理としては、電解金属めっき、無電解金属めっき、置換金属めっき等、任意の金属を任意の量で析出させる、任意のめっき処理が可能である。また、複数のめっき処理が行われても良い。該めっき処理により、本発明の複合材料は樹脂基体と金属だけでなく、さらに、1以上のめっき金属層を有することとな

る。

#### 【0040】

本発明の、樹脂基体と金属との接合強度が向上された複合材料は、銅張り積層板、TAB (tape automated bonding)、FPC (flexible printed circuit)、CSP (chip size package) のような、高い接合強度が求められる用途に特に有用であるが、これに限定されるものではなく、樹脂基体と金属とを含む複合材料が使用される任意の用途に使用可能である。

以下、実施例によって本発明を詳述するが、該実施例は本発明の範囲を限定するものではない。

#### 【0041】

##### 【実施例】

##### ピール強度測定方法

本発明の方法により金属元素を含有する薄膜を形成した後、10ないし30ミクロンの銅被膜を硫酸銅メッキにより形成する。120℃で1時間アニーリングした後、被膜を1cm幅にカットし、引張り試験機を用い、30mm/分の速度で垂直引き剥がし試験 (90°ピール強度) により測定した。

##### 硫酸銅めっき処理

以下の硫酸銅めっき液を用いて複合材料の硫酸銅めっき処理を行った。めっき条件は各実施例の処理工程に記載する。

##### 硫酸銅めっき浴組成

硫酸銅 (5水塩)	75 g/L
硫酸 (98%)	190 g/L
塩化物イオン	50 mg/L
カバーグリーム ST-901AM*	2 mL/L
カバーグリーム ST-901BM*	10 mL/L

(\* : 日本リーロナール株式会社製)

#### 【0042】

実施例1 (イオン交換基導入剤処理、銅導入)

東レ・デュポン社製カプトン200H（ポリイミド樹脂）を後述の処理工程1で処理して樹脂基体上に銅薄膜を形成させた。銅薄膜形成後、硫酸銅めっき処理し、銅を $25\mu\text{m}$ 析出させた。この複合材料を、 $300^{\circ}\text{C}$ 、 $2450\text{N}/\text{cm}^2$ 、30分間熱圧着を行うことにより本発明の複合材料を形成した。この複合材料において、樹脂基体と銅薄膜との接合強度は $10.8\text{N}/\text{cm}$ の値を示した。

【0043】

【表1】

処理工程1

16M- $\text{H}_2\text{SO}_4$ /35%- $\text{H}_2\text{O}_2$  0.05mL/L の $(\text{CH}_3\text{CO})_2\text{O}$  溶液  $60^{\circ}\text{C}$ 、4min

水洗 室温、1min

1M-KOH 室温、5min

水洗 室温、1min

0.1M- $\text{CuSO}_4$  室温、5min

水洗 室温、1min

7mM- $\text{NaBH}_4$  室温、30min

水洗 室温、1min

自然乾燥

硫酸銅めっき(カパーグリーン ST-901)  $3\text{A}/\text{dm}^2$ 、 $25^{\circ}\text{C}$ 、45min

水洗 室温、2min

防錆処理 室温、1min

水洗 室温、2min

乾燥

熱圧着

【0044】

実施例2（イオン交換基導入剤処理、ニッケル導入）

東レ・デュポン社製カプトン200Hを後述の処理工程2で処理して樹脂基体上にニッケル薄膜を形成させた。ニッケル薄膜形成後、硫酸銅めっき処理し、銅を $25\mu\text{m}$ 析出させた。この複合材料を、 $300^{\circ}\text{C}$ 、 $2450\text{N}/\text{cm}^2$ 、30分間熱圧着を行うことにより本発明の複合材料を形成した。この複合材料において、樹脂基体とニッケル薄膜との接合強度は $11.8\text{N}/\text{cm}$ の値を示した。

【0045】

## 【表 2】

処理工程 2

16M-H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/35%-H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 0.05mL/L の(CH<sub>3</sub>CO)<sub>2</sub>O 溶液 60℃、4min

水洗 室温、1min

1M-KOH 室温、5min

水洗 室温、1min

0.1M-NiSO<sub>4</sub> 室温、5min

水洗 室温、1min

7mM-NaBH<sub>4</sub> 室温、30min

水洗 室温、1min

自然乾燥

硫酸銅めっき(パターナ ST-901) 3A/dm<sup>2</sup>、25℃、45min

水洗 室温、2min

防錆処理 室温、1min

水洗 室温、2min

乾燥

熱圧着

## 【0046】

## 実施例 3 (イオン交換基導入剤処理、銅導入)

日立化成デュポンマイクロシステムズ社製PIX3400 (ポリイミド樹脂) をアルミナ基板に10μm塗布し、130℃、30分間熱硬化した。この基体を次の処理工程3で処理し、銅薄膜を形成した。銅薄膜形成後、硫酸銅めっき処理し、銅を10μm析出させた。この複合材料を、300℃、2450N/cm<sup>2</sup>、30分間熱圧着を行うことにより本発明の複合材料を形成した。この複合材料において、樹脂基体と銅薄膜との接合強度は11.8N/cmの値を示した。

## 【0047】

【表 3】

処理工程 3

0.5M-KOH 室温、1.5min

水洗 室温、1min

0.05M-CuSO<sub>4</sub> 室温、3min

水洗 室温、1min

5mM-NaBH<sub>4</sub> 室温、3min

水洗 室温、1min

4 回繰り返し

自然乾燥

硫酸銅めっき(カークリーム ST-901) 3A/dm<sup>2</sup>、25℃、45min

水洗 室温、2min

防錆処理 室温、1min

水洗 室温、2min

乾燥

熱圧着

【0048】

## 実施例 4 (イオン交換基導入剤処理、ニッケル-コバルト導入)

東レ・デュポン社製カプトン 200H を後述の処理工程 4 で処理して樹脂基体上にニッケル-コバルト (Ni : Co = 1 : 1) 薄膜を形成させた。ニッケル-コバルト薄膜形成後、硫酸銅めっき処理し、銅を 25 μm 析出させた。この複合材料を、300℃、2450 N/cm<sup>2</sup>、30 分間熱圧着を行うことにより本発明の複合材料を形成した。この複合材料において、樹脂基体とニッケル-コバルト薄膜との接合強度は 12.7 N/cm の値を示した。

【0049】



【表 4】

処理工程 4

16M- $\text{H}_2\text{SO}_4$ /35%- $\text{H}_2\text{O}_2$  0.05mL/L の $(\text{CH}_3\text{CO})_2\text{O}$  溶液 60℃、4min

水洗 室温、1min

1M-KOH 室温、5min

水洗 室温、1min

0.05M- $\text{NiSO}_4$  /0.05M- $\text{Co SO}_4$  混合溶液 室温、5min

水洗 室温、1min

7mM- $\text{NaBH}_4$  室温、30min

水洗 室温、1min

自然乾燥

硫酸銅めっき(カパーグ リーム ST-901) 3A/dm<sup>2</sup>、25℃、45min

水洗 室温、2min

防錆処理 室温、1min

水洗 室温、2min

乾燥

熱圧着

## 【0050】

## 実施例 5 (イオン交換基導入剤処理、銀導入)

東レ・デュポン社製カプトン 200H を後述の処理工程 5 で処理して樹脂基体上に銀薄膜を形成させた。銀薄膜形成後、硫酸銅めっき処理し、銅を 25  $\mu\text{m}$  析出させた。この複合材料を、300℃、2450 N/cm<sup>2</sup>、30 分間熱圧着を行うことにより本発明の複合材料を形成した。この複合材料において、樹脂基体と銀薄膜との接合強度は 12.7 N/cm の値を示した。

## 【0051】

## 【表 5】

処理工程 5

16M- $\text{H}_2\text{SO}_4$ /35%- $\text{H}_2\text{O}_2$  0.05mL/L の  $(\text{CH}_3\text{CO})_2\text{O}$  溶液 60℃、4min

水洗 室温、1min

1M-KOH 室温、5min

水洗 室温、1min

0.05M- $\text{AgNO}_3$  室温、5min

水洗 室温、1min

7mM- $\text{NaBH}_4$  室温、30min

水洗 室温、1min

自然乾燥

硫酸銅めっき(カパーグリーム ST-901) 3A/dm<sup>2</sup>、25℃、45min

防錆処理 室温、1min

水洗 室温、2min

防錆処理 室温、1min

水洗 室温、2min

乾燥

熱圧着

## 【0 0 5 2】

## 実施例 6 (プラズマ処理、銅導入)

日立化成デュボンマイクロシステムズ社製 PIX 3 4 0 0 をアルミナ基板に 1 0  $\mu\text{m}$  塗布し、1 3 0 ℃、3 0 分間熱硬化した。この基体を次の処理工程 6 で処理し、銅薄膜を形成した。銅薄膜形成後、硫酸銅めっき処理し、銅を 1 0  $\mu\text{m}$  析出させた。この複合材料を、3 0 0 ℃、2 4 5 0 N/cm<sup>2</sup>、3 0 分間熱圧着を行うことにより本発明の複合材料を形成した。この複合材料において、樹脂基体と銅薄膜との接合強度は 1 1 . 8 N/cm の値を示した。

## 【0 0 5 3】

【表 6】

処理工程 6

0.5M-KOH 室温、1.5min

水洗 室温、1min

乾燥

プラズマ処理（日本ペイント（株）社製常圧プラズマ装置）80 kV  
電極間距離 2 cm、10 分間処理

0.05M-CuSO<sub>4</sub> 室温、5min

水洗 室温、1min

5mM-NaBH<sub>4</sub> 室温、30min

水洗 室温、1min

硫酸銅めっき(カパーグリーン ST-901) 3A/dm<sup>2</sup>、25℃、45min

水洗 室温、2min

防錆処理 室温、1min

水洗 室温、2min

乾燥

熱圧着

## 【0054】

上記実施例 1～6 の結果から、本発明の方法により製造された複合材料は、樹脂基体と金属薄膜との間の接合強度に優れるものであることが明らかとなった。

## 【0055】

実施例 7（熱圧着温度による接合強度の変化）

熱圧着条件のうち、温度を 100～300℃に変更したことを除き、実施例 3 と同一の条件で複合材料を形成し、樹脂基体と金属被膜との接合強度を測定した。図 1 は、熱圧着温度を横軸に、接合強度を縦軸にとった、両者の相関を表すグラフである。

図 1 から明らかなように、100～300℃の範囲では、接合強度は、熱圧着温度の上昇と共に向上した。

## 【0056】

実施例 8（熱圧着圧力による接合強度の変化）

熱圧着条件のうち、圧力を 490～2450 N/cm<sup>2</sup>に変更したことを除き

、実施例3と同一の条件で複合材料を形成し、樹脂基体と金属被膜との接合強度を測定した。図2は、熱圧着圧力を横軸に、接合強度を縦軸にとった、両者の相関を表すグラフである。

図2から明らかなように、 $490 \sim 2450 \text{ N/cm}^2$ の範囲では、接合強度は、熱圧着圧力の上昇と共に向上した。

【0057】

【発明の効果】

以上、説明したように、本発明の複合材料は、樹脂基体と金属との間の接合強度が向上しており、密着性に優れるので、樹脂上に金属が配置された複合材料において、密着性が要求される各種の用途において有用である。

また、本発明の方法は、樹脂基体と金属との間の接合強度を向上させるために熱圧着法の使用が可能なので、樹脂基体と金属との密着性に優れた複合材料を簡易に製造することができる。

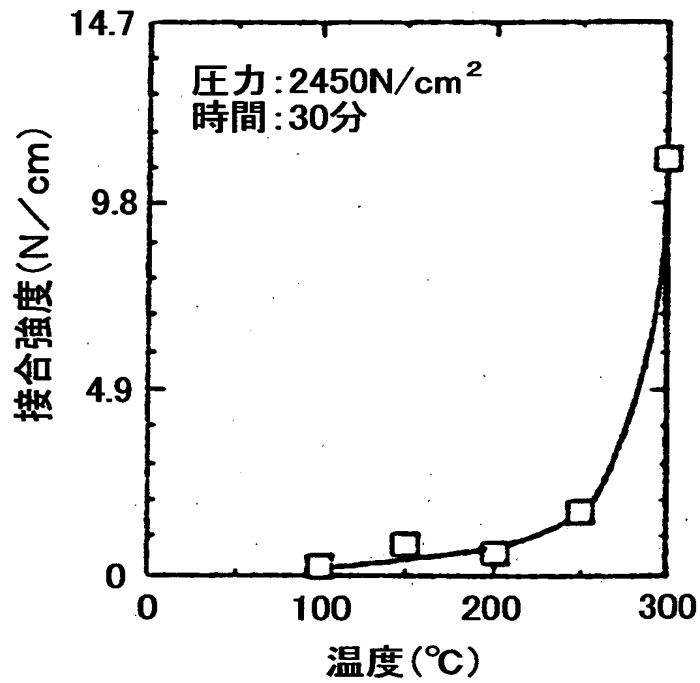
【図面の簡単な説明】

【図1】 図1は、熱圧着温度を横軸に、接合強度を縦軸にとった、両者の相関を表すグラフである。

【図2】 図2は、熱圧着圧力を横軸に、接合強度を縦軸にとった、両者の相関を表すグラフである。

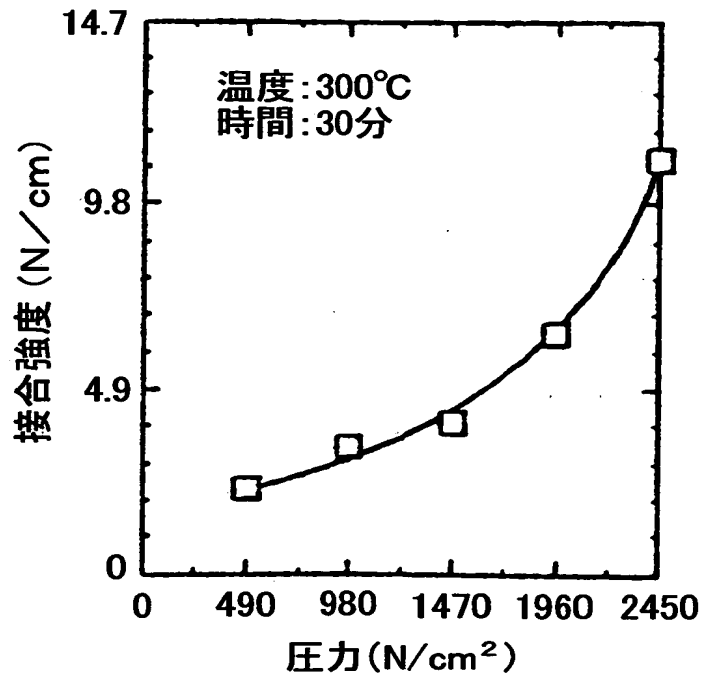
【書類名】 図面

【図 1】



温度と接合強度との関係

【図 2】



圧力と接合強度との関係

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 接合強度が向上された複合材料およびその形成方法を提供する。

【解決手段】 樹脂基体の表面をイオン交換基導入処理し、該樹脂基体の表面を金属イオン含有液で処理して金属イオンを導入し、該金属イオンを還元することにより得られる、樹脂基体の表面に金属を有する複合材料であって、さらに、該複合材料の樹脂基体と金属とが熱圧着されることを特徴とする前記複合材料樹脂を提供する。該複合材料は、樹脂基体と金属との接合強度に劣る無電解めっきにより得られる複合材料よりも、樹脂基体と金属との接合強度に優れる。さらに、該複合材料の形成に際しては熱圧着法が使用できるので、該複合材料を簡易に製造可能である。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-397489
受付番号	50001690611
書類名	特許願
担当官	第三担当上席 0092
作成日	平成13年 3月 8日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成12年12月27日
-------	-------------



【書類名】 手続補正書  
 【整理番号】 NP-18-10  
 【あて先】 特許庁長官 殿  
 【事件の表示】

【出願番号】 特願2000-397489

【補正をする者】

【識別番号】 591138566

【氏名又は名称】 日本リーロナール株式会社

【代理人】

【識別番号】 100073139

【弁理士】

【氏名又は名称】 千田 稔

【手続補正 1】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 発明者

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナール  
株式会社技術研究所内

【氏名】 清田 優

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナール  
株式会社技術研究所内

【氏名】 土田 秀樹

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナール  
株式会社技術研究所内

【氏名】 今成 眞明

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナル株式会社技術研究所内

【氏名】 日下 大

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナル株式会社技術研究所内

【氏名】 蓬田 浩一

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市真上町5丁目38-34

【氏名】 縄舟 秀美

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市東灘区岡本8-9-1 甲南大学 理学部内

【氏名】 水本 省三

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市東灘区岡本8-9-1 甲南大学 理学部内

【氏名】 池田 慎吾

【その他】 誤記の理由：本件特許出願（以下、本願という）は、水本省三、池田慎吾（以上2名の住所（居所）：兵庫県神戸市東灘区岡本8-9-1甲南大学 理学部内）、縄舟秀美（住所（居所）：大阪府高槻市真上町5丁目38-34）、清田優、土田秀樹、今成真明、日下大および蓬田浩一（以上5名の住所（居所）：埼玉県大宮市吉野町2-269-4 日本リーロナル株式会社技術研究所内）の合計8名の共同発明にかかるものですが、本願の願書において、発明者である水本省三および池田慎吾についての記載が漏れていたことが判明いたしました。

これは、願書作成者が錯誤により、本願の願書を作成する際に、発明者として記載されるべき水本省三および池田慎吾についての記載を誤り、また、出願前に完成した出願書類をチェックする際にも、その記載漏れを看過してしまったため生じたものであります。したがって、本願の願書において、発明者として水本省三および池田慎吾を新たに加える訂正をすることは、本書と同日に提出する宣誓書および譲渡証書からも明らかなとおり、本願の出願前に成立した権利関係を変更するものではありません。以上をご勘案の上、本願の願書の発明者の記載をご訂正くださいますようお願いいたします。

【プルーフの要否】 要

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-397489
受付番号	50100126428
書類名	手続補正書
担当官	喜多川 哲次 1804
作成日	平成13年 3月 8日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成13年 1月30日
-------	-------------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [591138566]

1. 変更年月日 1999年12月 8日  
[変更理由] 住所変更  
住 所 東京都中央区東日本橋2丁目28番5号  
氏 名 日本リーロナル株式会社
2. 変更年月日 2001年 8月21日  
[変更理由] 住所変更  
住 所 東京都千代田区三番町6番地3  
氏 名 日本リーロナル株式会社